

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 30 日現在

機関番号：82502

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26289360

研究課題名(和文) 摩擦攪拌処理強化高強度W皮膜形成の基礎的研究

研究課題名(英文) Basic study on the modification of vacuum plasma sprayed tungsten coating by friction stir processing

研究代表者

谷川 博康 (Tanigawa, Hiroyasu)

国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・核融合エネルギー研究開発部門 核融合炉構造材料開発グループ  
・グループリーダー

研究者番号：50354668

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,200,000円

研究成果の概要(和文)：プラズマ対向壁材として期待されるタングステン(W)の開発の一環として、真空溶射等により形成された空隙の多いW皮膜に対し摩擦攪拌処理(FSP)による強化を試み、空隙を潰しバルクW並の熱伝導率と高強度を有するW皮膜に強化できることを確認した。さらにこのFSP強化Wが繰り返し熱負荷に耐えることを最大1000回の繰り返し加熱試験で実証した。

新たなW成膜方法として、ウォームスプレー法の適用性を検討し、安定した成膜には原料粉末の予熱機構等の改良が必要であることを見出した。3Dプリンティング技術の一つである粉末床溶融結合法によるW皮膜形成技術についても検討し、気孔率の高いもののW皮膜の成膜に成功した。

研究成果の概要(英文)：Tungsten (W) is the primary candidate material as a plasma facing material in fusion devices. The vacuum plasma spray (VPS) technique has been investigated, but the issues are its low thermal conductivity and low strength of VPS-W mainly caused by the porous structure of VPS-W. In order to solve these issues, friction stir processing (FSP) was applied on VPS-W, and it was suggested that FSP can contribute to significant improvement both in mechanical and thermal properties of VPS-W coating. Hardness test over FSPed VPS-W layer revealed that the hardness of W becomes equivalent to or higher than that of bulk W. Thermal conductivity was about 80% of bulk W at 200 °C, but it becomes equivalent to that of bulk W over 800 °C. Warm Spray (WS) method and Selective Laser Melting (SLM) method have been examined as the potential new technique as the W coating, and it turned out that SLM can form a decent thickness of W coating, but with a larger porosity.

研究分野：核融合材料開発

キーワード：摩擦攪拌処理 耐熱皮膜 タングステン 真空溶射 ウォームスプレー法 粉末床溶融結合法

## 1. 研究開始当初の背景

核融合炉のプラズマ対向面は、高熱輻射および粒子線負荷を高エネルギー中性子照射下で受ける過酷な環境にさらされる。このため、ブランケット第一壁やダイバータのプラズマ対向面の材料として、耐スパッタ性が良好で高融点で熱伝導率がよく、かつ、高融点金属の中でも比較的誘導放射能が低いタングステン(W)が最有力候補として開発研究が進められている。

プラズマ対向材としてのWには、想定使用期間を通して熱負荷・粒子線負荷によって生じる熱応力に耐えうる靱性、および熱伝導性を有することが求められる。特にWの熱伝導率および基盤構造材との接合界面での熱伝達率の確保は、最表面の高温化による脆化や繊維状組織の発生を抑制するという観点で非常に重要である。これまでバルクWの拡散接合や、真空プラズマ溶射(Vacuum plasma spray, VPS)による基盤構造材(低放射化フェライト鋼)に対するW被覆が検討されているが、前者ではバルクWの性能は確保できるが接合界面上に脆い中間層が生じること、後者では界面上に異相は生じないがVPS-W中に溶射過程で生じる空隙が界面に平行に(熱流束方向に対して垂直に)生じることが、熱伝導率低下や強度低下といった本質的課題を招いている。

この課題を克服する手法として、摩擦攪拌処理(Friction Stir Processing, FSP)により、VPS-Wの空隙の解消とWの細粒化による強化(バルクWの約1.5倍)に成功していたが、VPS法による成膜時に生成したと推測される極薄酸化皮膜にそってき裂が発生することから、VPS条件の最適化、あるいは代替W被覆手法の検討が必要であった。また、プラズマ対向材として利用する上では重照射および繰り返し熱負荷に耐えることが期待される。よってFSP強化の適用性を評価するにはこれらの負荷に対する耐性についても評価が必要である。

## 2. 研究の目的

本研究では、上記の背景にもとづき、以下を目的として研究開発活動を行った。

(1) 有害な酸化皮膜を含まないW成膜手法の検討：本研究では原料粉末を融点以下の温度範囲にて加熱軟化させつつ超音速に加速し、固相状態のまま衝突密着させるウォームスプレー(Warm Spray, WS)法の適用性を検討した。また別手法として、三次元積層造形法の一つで、レーザによる高精度な溶融制御により、溶射と比較してより組織制御を精密に行いやすく入熱を最小限にできる粉末床溶融結合法(SLM: Selective Laser Melting)の適用性を評価した。

(2) FSP強化されたW皮膜の健全性評価：FSP強化Wについて、硬さおよび熱特性等の基本的特性を評価した。また耐照射性につ

いてはWイオンによる照射実験による評価を実施した。また、繰り返し熱負荷耐性については電子ビーム加熱実験による繰り返し熱負荷実験を実行した。

## 3. 研究の方法

(1) WS法によるW成膜試行においては、タングステン粒子が密着するために必要な粒子温度、粒子速度を有限要素法により導出し、さらに粒子衝突数値シミュレーション技術を開発してWS接合条件の検討を行った。この検討結果に基づきWS法を用いたW皮膜形成のための最適条件の探索を行った。特に粒子温度の影響に着目し、燃焼炎の温度を制御する不活性ガス(窒素を利用)流量について変化させて実験を行った。

(2) SLM法によるW成膜試行においては、積層造形装置としてコンセプトレーザ社のMlabを利用し、スキャン速度、1層あたりの積層厚さをパラメータとしてSLM成膜条件の検討を行った。

(3) FSP強化W皮膜の健全性評価においては、最も高い緻密度の組織を示したFSP条件(ツール回転速度600rpm、負荷荷重2ton、2重施工)でFSP強化されたVPS-Wを対象として、2mm厚さの皮膜を基盤から切り離し、高温硬さ試験、熱伝導率試験を実施した。また、0.5mm厚さの皮膜について界面よりTEM試料を作成して組織健全性を評価した。

(4) 耐照射性評価においては、同条件でFSP強化されたVPS-Wを対象としてWイオン照射試験を実施した。イオン照射試験は量研機構高崎研TIARA照射施設を利用して18MeV W<sup>6+</sup>イオンによる照射実験を実施し、照射後にナノインデントレーション試験による照射影響の評価を行った。

(5) 熱負荷試験においては、厚さ15mmの低放射化フェライト鋼F82H上に0.5mm厚さのVPS-W皮膜を成膜して上記と同条件でFSP強化したもののから冷却配管を有する熱負荷試験体を製作して、量研機構の電子ビーム熱負荷試験装置JEBISにて最大1,000回の繰り返し熱負荷試験を実施した。並行して有限要素法によりW皮膜表面が550になる熱負荷条件で計算を実施し、熱応力負荷を評価した。

## 4. 研究成果

(1) WS法によるW成膜試行においては、まず解析において粒子温度を773~1773K、粒子速度を100~1000m/sまで、それぞれ100K、100m/s毎変化させて、粒子衝突シミュレーションを行い、粒子速度800m/s以上、粒子温度1473K以上あれば、界面部最大温度が融点に達し、接合すると予測された。この結果に基づき実施したWS法W成膜試行では、単一粒子の付着実験で得られたW粒子と基材界

面には、酸化物の存在などは認められず、目的とする酸化抑制を大気中で実現できる可能性が示唆された。しかし、複数粒子が偶然に衝突し、積み重なっている領域では、粒子界面や粒子/基材界面に大きな隙間が生じており、後続の粒子衝突により、接合強度の弱い界面が破壊されていることが認められた。このため、原料粉末を連続的に吹き付ける場合、粒子の堆積とエロージョンが交互に発生しており、皮膜構造の形成に至っていないものと推測された。様々な成膜条件による検討の結果、現有の WS 装置により達成できる粒子速度、および予加熱温度範囲では粒子が衝突時に十分に昇温できず、堆積できないことが明らかになった。比較のため従来の溶射法を試行したところ、溶射自体は成功することが示されたが、大気中の溶融プロセスでは酸化が大きく進むことが確認された。以上から、原料粉末を予めある程度の温度まで加熱してから装置へ投入する予熱機構等の WS 法の改良が必要であることが示唆された。

(2) SLM 法による W 成膜試行においては、熱源として、出力 95 W、レーザスポット径 50  $\mu\text{m}$  の Yb:YAG ファイバーレーザを使用し、酸化防止のために Ar 雰囲気中にて造形を行った。二種類の原料粉末、粉末 A (粒径 7.6~12.0  $\mu\text{m}$ 、アライドマテリアル社製 WD100) および粉末 B (粒径 3.6~4.4  $\mu\text{m}$ 、同社製 WD10) を用いて成膜を行った。1 層あたりの積層厚さを 10、15、20、25  $\mu\text{m}$  と変化させ、積層厚さのコーティング組織への影響を調べた結果(図 1)、粉末 A を利用した際、全般的に気孔率が高く、1 層辺りの積層厚さが小さくなり、レーザ照射のエネルギー密度が上がるほど、より相対的に緻密になっていく傾向が認められる(図 2)。このことから、緻密化を図るのであれば、エネルギー密度の向上が必要であることが示唆された。また、より細かい粉末 B では、溶融凝固により形成されたタングステン塊が小さく、また未溶融あるいは溶融後接合できなかつたと考えられる組織

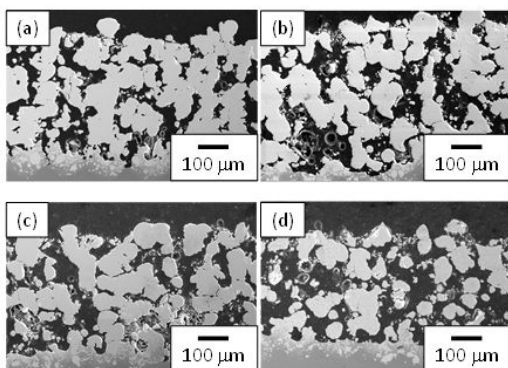


図 1. 1 層あたりの積層厚さのタングステン膜組織への影響：(a) 10  $\mu\text{m}$ , (b) 15  $\mu\text{m}$ , (c) 20  $\mu\text{m}$ , (d) 25  $\mu\text{m}$

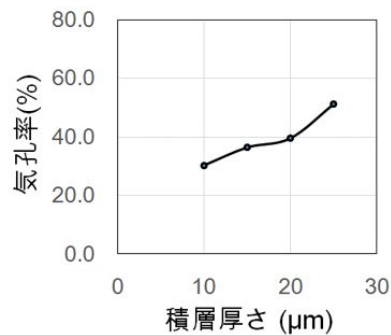


図 2. 積層厚さと気効率の相関

が観察された。これは粉末 B の流動性が低い事が要因と考えられ、原料粉末の流動性向上の必要性が示唆された。

(3) FSP 強化 W 皮膜の健全評価においては、高温真空硬さ試験およびレーザーフラッシュ法による熱伝導率評価を実施した。その結果、室温から 1000 度に至るまで FSP 強化された VPS-W はバルク W より高い強度を示すこと(図 3 (a))、熱伝導率もバルク W と比較して低温では 8 割、1000 度近傍では同等の熱伝導率を示すこと(図 4 (b))が明らかになった。さらに、FSP 強化された VPS-W と基盤材との界面組織について TEM 観察を実施したところ、300nm 程度の厚さの微細な組織混合領域が観察されたが、空隙等は観察されず健全な接合面を形成している様子が確認された。

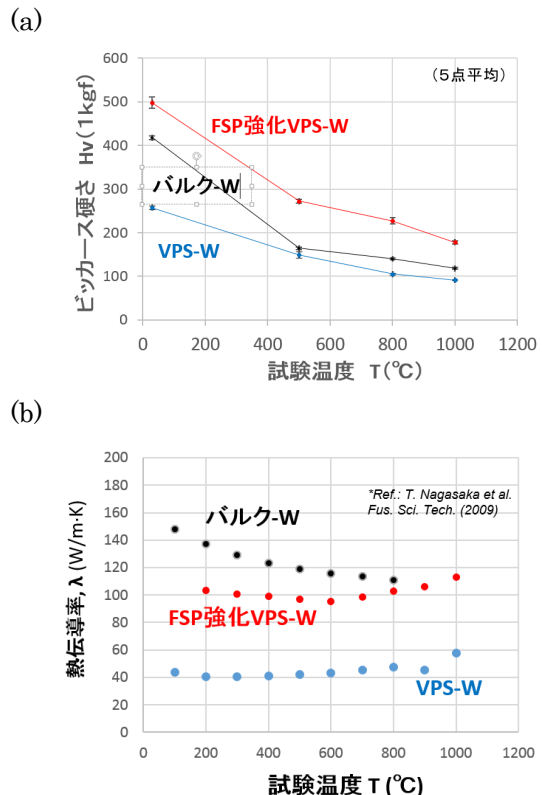


図 3 VPS-W、FSP 強化 VPS-W、およびバルク W の(a)ピッカース硬さ、および(b)熱伝導率の温度依存性。

(4) 耐照射性評価においては、500 および 800 にて、最大 5dpa まで W 自己イオン照射実験を実施し、照射後室温にて微細粒組織を対象にナノインデーション試験を実施した。その結果、500□では FPS 強化 VPS-W、VPS-W とともにバルク W より硬く、照射による変化が極めて小さいこと、800□では照射量が高くなると回復による軟化が進むことが明らかになった(図4)。

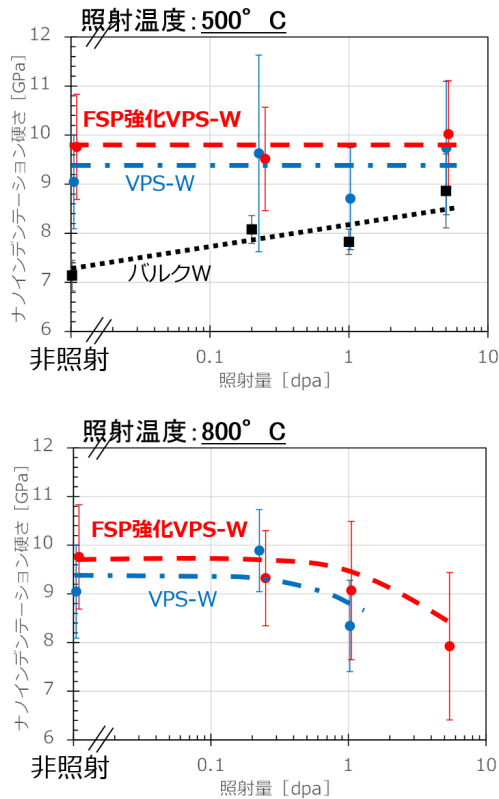


図4 VPS-W、FPS 強化 VPS-W、およびバルク W のナノインデーション硬さの照射量依存性

(5) 熱負荷試験においては、基盤材に対して直径 8mm の冷却チャンネルを削孔して 2 つの FPS 強化された領域にまたがるように熱負荷試験体を作成した(図5)。この試験体に対して表面温度が 550□になる条件で 10 秒間の繰り返し電子ビーム加熱試験を実施した。最大 1000 回の繰り返し熱負荷試験を実施したが、熱負荷表面には有意な温度上昇は計測されず、表面剥離や大きなき裂発生等は観察されなかった(図6)。この試験体をモデル化して表面温度が 550□になる条件で有限要素法解析を実施したところ、W 表面側では 1 GPa 強のミーゼス応力が発生していることが示された(図7)。本結果は、FPS 強化された VPS-W 皮膜が良好な接合性および耐繰り返し熱負荷性能を有することを示す結果であり、開発された本手法が、プラズマ対向材製作手法として有望であることを示す結果と言える。

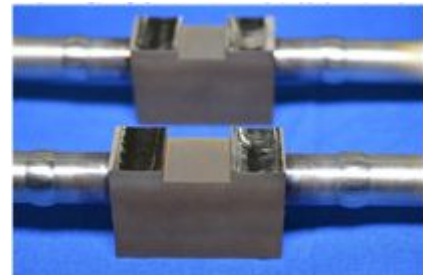


図5 熱負荷試験体の外観写真

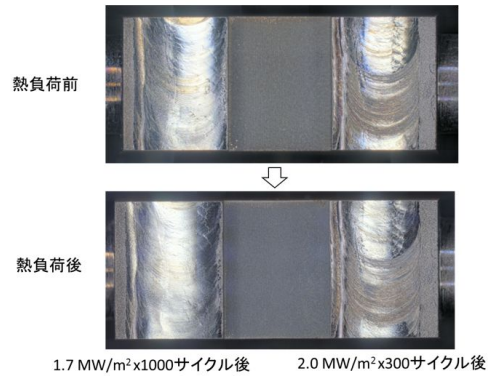


図6 試験前後の熱負荷試験体表面写真

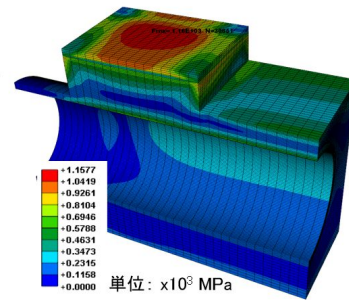
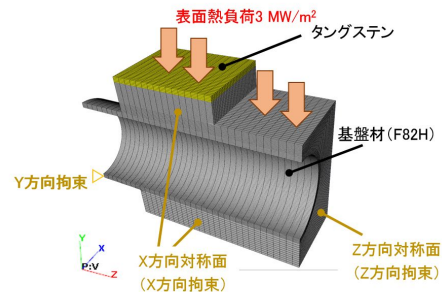


図7 熱負荷試験体 1/4 対称モデル(上)と有限要素解析ミーゼス応力分布結果(下)

## 5. 主な発表論文等 〔雑誌論文〕(計2件)

H. Tanigawa, K. Ozawa, Y. Morisada, S. Noh, H. Fujii, Modification of vacuum plasma sprayed tungsten coating on reduced activation ferritic/martensitic steels by friction stir processing, Fusion Eng. Des. 査読有, 98-99, 2015, 2080-2084  
DOI: 10.1016/j.fusengdes.2015.04.059

K. Ozawa, H. Tanigawa, Y. Morisada, H. Fujii, Impacts of friction stir processing on irradiation effects in vacuum-plasma-spray coated tungsten, Fusion Eng. Des., 査読有, 98-99, 2015, 2054-2057  
DOI: 10.1016/j.fusengdes.2015.06.104

〔学会発表〕(計8件)

谷川博康、小沢和巳、森貞好昭、藤井英俊、盧相燾、真空プラズマ溶射タンゲステン皮膜の摩擦攪拌処理による強化、2014年9月9日、日本原子力学会2014年秋の大会、京都大学(京都府・京都市)

小沢和巳、谷川博康、森貞好昭、藤井英俊、真空プラズマ溶射法で成膜し摩擦攪拌処理を施したW-F82H鋼のイオン照射後硬さと微細組織、2014年9月9日、日本原子力学会2014年秋の大会、京都大学(京都府・京都市)

H. Tanigawa, K. Ozawa, Y. Morisada, S. Noh, H. Fujii, Modification of vacuum plasma sprayed tungsten coating on reduced activation ferritic/martensitic steels by friction stir processing, 28<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2014年9月30日, San Sebastian (Spain)

K. Ozawa, H. Tanigawa, Y. Morisada, H. Fujii, Impacts of friction stir processing on irradiation effects in vacuum-plasma-spray coated tungsten, 28<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2014年9月30日, San Sebastian (Spain)

森貞好昭、藤井英俊、小沢和巳、谷川博康、減圧プラズマ溶射タンゲステン皮膜への摩擦攪拌プロセス、溶接学会平成27年度春季全国大会、2015年4月24日、一橋大学(東京都・千代田区)

K. Ozawa, H. Tanigawa, H. Kurotaki, M. Ando, Y. Morisada, S. Kondo, H. Fujii, T. Hinoki, Ion irradiation effects on microstructure and mechanical properties of VPS-W coated F82H modified by friction stir processing, 29<sup>th</sup> Symposium on Fusion Technology, 2016年9月5日、Prague (Czech Rep.)

H. Tanigawa, K. Ozawa, Y. Morisada, H. Fujii, Modification of vacuum plasma sprayed tungsten coating by friction stir processing, 4<sup>th</sup> International Symposium on Visualization in Joining & Welding Science through Advanced Measurements and Simulation, 2016年10月18日、ホテル阪急エキスポパーク(大阪府・吹田市)

渡邊誠、岸本哲、黒田聖治、谷川博康、粉末床溶融結合法によるタンゲステン膜形成の試み、日本溶射学会秋季大会、2016年11月17~18日、ウエルとばた(福岡県・北九州市)

〔図書〕なし

〔産業財産権〕なし

〔その他〕なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

谷川 博康 (TANIGAWA Hiroyasu)  
量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所・核融合炉材料研究開発部・核融合炉構造材料開発グループ・グループリーダー  
研究者番号: 50354668

(2) 研究分担者

小沢 和巳 (OZAWA Kazumi)  
量子科学技術研究開発機構・六ヶ所核融合研究所・核融合炉材料研究開発部・核融合炉構造材料開発グループ・主幹研究員  
研究者番号: 80613330

渡邊 誠 (WATANABE Makoto)  
物質・材料研究機構・構造材料研究拠点・積層スマート材料グループ・グループリーダー  
研究者番号: 00391219

黒田 聖治 (KURODA Seiji)  
物質・材料研究機構・先進高温材料ユニット・ユニット長  
研究者番号: 50354220

(3) 連携研究者

藤井 英俊 (FUJII Hidetoshi)  
大阪大学・接合科学研究所・教授  
研究者番号: 00247230

森貞 好昭 (MORISADA Yoshiaki)  
大阪大学・接合科学研究所・教授  
研究者番号: 00415356

荒木 弘 (ARAKI Hiroshi)  
物質・材料研究機構・主幹エンジニア  
研究者番号: 90354349

江里 幸一郎 (EZATO Kohichiro)  
量子科学技術研究開発機構・核融合エネルギー研究開発部門・上席研究員  
研究者番号: 30354624

関 洋治 (SEKI Yoji)  
量子科学技術研究開発機構・核融合エネルギー研究開発部門・主幹研究員  
研究者番号: 00469793

(4) 研究協力者 なし